

## 明 細 書

### セラミックハニカムフィルタ、排気ガス浄化装置及び排気ガス浄化方法 技術分野

[0001] 本発明は、ディーゼルエンジンから排出されたガスに含まれる微粒子を除去する装置に好適に用いられるセラミックハニカムフィルタ及びセラミックハニカムフィルタを有する排気ガス浄化装置、並びに排気ガス浄化方法に関する。

#### 背景技術

[0002] 近年、ディーゼルエンジンの排気ガス中から炭素を主成分とする微粒子を除去するため、セラミックハニカム構造体の複数の流路を両端部で交互に目封止したセラミックハニカムフィルタ(以下、「セラミックハニカムフィルタ」を略して「ハニカムフィルタ」という)が使用されるようになってきた。

[0003] 通常、ハニカムフィルタは外周壁と、この外周壁の内周側で隔壁により囲まれた多数の流路を有する多孔質セラミックハニカム構造体(以下、「多孔質セラミックハニカム構造体」を略して「ハニカム構造体」という)からなる。多数の流路の排気ガス流入側端面及び流出側端面は、交互に目封止されている。流入側端面に開口した流路からハニカムフィルタ内に侵入した排気ガスは、隔壁に形成した細孔内を通過して隣接する流路に入り、流出側端面から排出される。排気ガスが隔壁を通過する際、排気ガス中に含まれる微粒子は主として隔壁に形成された細孔に捕集される。これにより、排気ガスが浄化される。

[0004] 細孔に捕集された微粒子が一定量以上になると、細孔の目詰まりが発生してハニカムフィルタの圧力損失が上昇し、エンジンの出力低下につながる。したがって、バーナーや電気ヒーターを用いて捕集した微粒子を定期的に燃焼させ、ハニカムフィルタを再生させる。

[0005] ハニカムフィルタの再生において、捕集された微粒子が多い程、ハニカムフィルタ内の温度を均一に制御することが困難である。特に高濃度に微粒子が堆積した箇所は、温度が上昇し易く、燃焼に伴つて発生する熱応力によりハニカムフィルタが破損するという問題がある。また場合によっては、ハニカムフィルタの温度がセラミック材料

の溶融温度以上に上昇し、隔壁に溶損が発生するという問題もある。一方、破損や溶損が起きないように再生時のハニカムフィルタの最高温度を低めに設定すると、微粒子の燃え残りが発生してしまう。そのため再生処理を行っても、ハニカムフィルタの圧力損失を十分に低減することができないという問題がある。

[0006] ハニカムフィルタの再生におけるこのような問題を解決するため、特公平3-68210号(特許文献1)には、両端開口部が互い違いに閉塞されたハニカム構造体と、ハニカム構造体のセルの排気ガス流入側に設けられた加熱手段とを有し、排気ガスの流入側に位置する閉塞部(目封止部)とセルの排気ガス流入側端面との間に空間が設けられた排気ガス浄化用構造物が記載されている。この排気ガス浄化用構造物においては、隔壁のみならず、閉塞部とセルの排気ガス流入側端面との間に設けられた空間にも微粒子が付着し、空間に付着した微粒子の燃焼によって発生した熱は隣接するセルに流入しながら下流に伝わり、隔壁に付着した微粒子を燃焼させると特許文献1には記載されている。しかし、加熱手段はセルの流入側のみに配置されいるため、流路方向に長いハニカムフィルタ内部の温度を流入側から流出側まで均一に制御することは難しく、微粒子の捕集量が多い場合には、微粒子の自己発熱により局所的に温度上昇箇所が発生し、破損や溶損に至るという問題がある。

[0007] 特公平7-106290号(特許文献2)には、隔壁表面に担持した白金族金属及びアルカリ土類金属酸化物を含んでなる触媒の作用により微粒子の燃焼が始まる温度を低下させ、燃焼によって微粒子を連続的に除去するディーゼル排気粒子用フィルタが開示されている。このディーゼル排気粒子用フィルタによれば、ディーゼルエンジンの作動によって得られる程度の低い温度でフィルタを連続的に再生でき、微粒子による目詰まりが避けられる旨が特許文献2には記載されている。しかし、このディーゼル排気粒子用フィルタを用いても微粒子の目詰まりによるフィルタの圧力損失の上昇を防止出来ない場合もあった。これは、特にディーゼルエンジン車を大都市で使用し、渋滞に巻き込まれた場合等、フィルタに担持された触媒の活性温度の下限である約300°Cを下まわるような温度で運転する状態が続くと、微粒子が十分に燃焼し得ないためであると考えられる。

[0008] 特開2002-122015号(特許文献3)には、ディーゼルエンジンの運転状態に応じて

触媒を担持させたフィルタへの微粒子の堆積量を推定した上で、燃料を未燃のままフィルタの上流側に噴射して前記触媒上で燃料の酸化反応を促し、その反応熱によりフィルタの内部温度を前記触媒の活性下限温度以上に維持し、堆積した微粒子を燃焼させる排気浄化方法が記載されている。この排気浄化方法によると、ディーゼルエンジンの運転状態に係わらず触媒が活性な状態に維持され、フィルタに捕集された微粒子を良好に燃焼できると特許文献3に記載されている。しかしながら、この排気浄化方法を採用しても、未燃のまま供給された燃料が十分に反応しない場合等、微粒子を十分に燃焼させることができず、微粒子の目詰まりによって圧力損失が早期に上昇し、使用できなくなるという問題が発生することがある。

[0009] 上述の問題点を解決してハニカムフィルタの再生を容易に行うため、本出願人は先に、多孔質セラミックハニカム構造体の流路を目封止することによりハニカム構造体の隔壁に形成された細孔に排気ガスを通過させる構造のセラミックハニカムフィルタであって、前記隔壁及び／又は目封止部の少なくとも一部に触媒が担持されているとともに、少なくとも一つの排気ガス流入側目封止部が排気ガス流入側端面より離れて配置されているセラミックハニカムフィルタを提案した(特願2003-93677号)。

[0010] このセラミックハニカムフィルタにおいては、ハニカムフィルタの上流にディーゼルエンジン用の燃料及び／又はディーゼルエンジン用以外の燃料(炭化水素等)を未燃のまま噴射し、ハニカムフィルタの隔壁及び目封止部に担持された触媒の作用により燃料を燃焼させる。燃料を燃焼させることにより、内燃機関から排気されるガス温度が低い状態でもハニカムフィルタに担持された触媒を活性下限温度以上に維持できる。したがって、排気ガス中の微粒子を十分に除去し、フィルタの破損や溶損の問題を回避すると共に、長期にわたり安定して圧力損失の増加を抑制できる。

[0011] しかしながら、このハニカムフィルタの場合、燃料の噴射のたびに排気ガスの温度が流入側目封止部付近で急激に上昇し、長時間使用すると流入側目封止部が破損する場合があった。この現象は、流路を流れる高温の排気ガスに直接接触する隔壁が熱膨張する一方で、目封止部の熱容量は比較的大きく、隔壁に比べて熱膨張が遅いために引張応力が生じるために起こるものと推定される。

[0012] 特許文献1:特公平3-68210号公報

特許文献2：特公平7-106290号公報

特許文献3：特開2002-122015号公報

## 発明の開示

### 発明が解決しようとする課題

[0013] 従って本発明の目的は、ハニカムフィルタに担持した触媒の作用により排気ガス中の微粒子を連続的に燃焼させることによって再生可能であって、ハニカムフィルタの細孔に微粒子が堆積することによる圧力損失の上昇を確実に回避しうると共に、フィルタの破損を回避し、長期にわたり安定して使用できるハニカムフィルタを提供することである。

[0014] 本発明のもう一つの目的は、ハニカムフィルタと、排気ガスに含まれる微粒子を燃焼させるための燃料を添加する装置とを有する排気ガス浄化装置であって、ハニカムフィルタの破損を生じ難い装置を提供することである。

[0015] 本発明のさらにもう一つの目的は、ハニカムフィルタを破損することなくハニカムフィルタの目詰まりを解消し、圧力損失の上昇を回避しながら排気ガスを浄化する方法を提供することである。

### 課題を解決するための手段

[0016] 上記目的に鑑み銳意研究の結果、本発明者らは、複数の多孔質セラミックハニカム構造体を流路方向に接合し、所望の流路を目封止し、触媒を担持させたセラミックハニカムフィルタにおいて、接合する多孔質セラミックハニカム構造体の端面間に隙間があるようになると、ハニカムフィルタの隔壁内に堆積した微粒子を燃焼させる際にハニカムフィルタの熱膨張による破損を回避しうることを発見し、本発明に想到した。

[0017] すなわち、本発明のセラミックハニカムフィルタは、隔壁により仕切られた多数の流路を有する複数の多孔質セラミックハニカム構造体が流路方向に接合され、所望の流路が目封止され、前記隔壁に形成された細孔が排気ガスに通過されるもので、少なくとも一つのハニカム構造体の隔壁と、このハニカム構造体に隣接するハニカム構造体の隔壁とが目封止部で流路方向に隙間を有するように接合されており、前記隔壁及び／又は目封止部の少なくとも一部に触媒が担持されていることを特徴とする。

[0018] 前記隙間は0.1～10 mmであるのが好ましい。前記触媒は少なくとも前記目封止部より前記排気ガスの流入側にある前記多孔質セラミックハニカム構造体の前記隔壁に担持されているのが好ましく、前記目封止部より前記排気ガスの流入側にある隔壁と、前記排気ガスの流出側にある隔壁とに、異なる特性を有する触媒が担持されているのがより好ましい。

[0019] 前記複数の多孔質セラミックハニカム構造体を接合する目封止部の端面は、前記セラミックハニカムフィルタの流入側端面から前記セラミックハニカムフィルタの全長の0.5倍以下の長さの区間にあるのが好ましい。

[0020] 本発明の排気ガス浄化装置は、隔壁により仕切られた多数の流路を有する複数の多孔質セラミックハニカム構造体が流路方向に接合され、所望の流路が目封止され、前記隔壁に形成された細孔が排気ガスに通過されるセラミックハニカムフィルタと、前記セラミックハニカムフィルタの上流に設けられた燃料添加手段とを有し、少なくとも一つのハニカム構造体の隔壁と、このハニカム構造体に隣接するハニカム構造体の隔壁とが目封止部で流路方向に隙間を有するように接合されており、前記隔壁及び／又は目封止部の少なくとも一部に触媒が担持されていることを特徴とする。

[0021] 本発明の排気ガス浄化方法は、隔壁により仕切られた多数の流路を有するセラミックハニカムフィルタの前記流路に排気ガスを流入させるもので、前記セラミックハニカムフィルタとして、少なくとも一つのハニカム構造体の隔壁と、このハニカム構造体に隣接するハニカム構造体の隔壁とが目封止部で流路方向に隙間を有するように接合されており、所望の流路が目封止されており、前記隔壁及び／又は目封止部の少なくとも一部に触媒が担持されているものを用い、前記セラミックハニカムフィルタの上流側で前記排気ガス中に燃料を添加し、前記セラミックハニカムフィルタの目封止部と、前記目封止部の排気ガス流出側にある多孔質セラミックハニカム構造体の少なくとも一部の温度を前記触媒の活性下限温度以上にすることを特徴とする。

### 発明の効果

[0022] 本発明のセラミックハニカムフィルタは、複数の多孔質セラミックハニカム構造体の隔壁を目封止部で流路方向に隙間があるように接合したものであるので、使用時に高温に曝されても、破損が起こり難い。したがって内部を十分に昇温し、目封止部や

ハニカム構造体の隔壁に担持させた触媒を十分に活性化させ、隔壁等の細孔に堆積した微粒子を燃焼させることができる。そのためフィルタの破損や溶損の問題を回避しつつ隔壁の細孔の目詰まりを解消し、長期間にわたって圧力損失の増加を防ぐことができる。

[0023] 本発明の排気ガス浄化装置はセラミックハニカムフィルタと、燃料添加装置とを有し、排気ガス中に燃料を添加し、触媒の作用によって排気ガスに含まれる微粒子を燃焼させるものである。燃料添加装置はセラミックハニカムフィルタの上流に設けられているので、ハニカムフィルタ全体を昇温し、ハニカムフィルタに担持した触媒を十分に活性化させて効率的に微粒子を燃焼させることができる。またセラミックハニカムフィルタは複数の多孔質セラミックハニカム構造体の隔壁が隙間をもって接合されたものであるので、熱膨張による破損が起こり難い。

[0024] 本発明の排気ガス浄化方法においては、本発明のセラミックハニカムフィルタを用い、ハニカムフィルタの上流側から排気ガス中に燃料を添加する。上流側で添加した燃料によってハニカムフィルタに担持した触媒は活性化し、ハニカムフィルタを昇温する。下流側に流入する排気ガスは高温になっているため、下流側のハニカムフィルタに担持された触媒を活性化させ、排気ガスに含まれる微粒子を十分に燃焼させて圧力損失の上昇を防止することができる。

### 図面の簡単な説明

[0025] [図1]本発明のセラミックハニカムフィルタの一例を示す模式断面図である。  
[図2]本発明のセラミックハニカムフィルタの別の例を示す模式断面図と、長手方向の温度変化を概略的に示すグラフである。  
[図3(a)]本発明のセラミックハニカムフィルタのさらに別の例を示す模式断面図である。  
[図3(b)]本発明のセラミックハニカムフィルタのさらに別の例を示す模式断面図である。  
[図3(c)]本発明のセラミックハニカムフィルタのさらに別の例を示す模式断面図である。  
[図4]本発明のセラミックハニカムフィルタの製造工程を示す模式断面図である。

[図5]本発明の排気ガス浄化装置の一例を示す模式断面図である。

[図6]比較例1のセラミックハニカムフィルタを示す模式断面図である。

[図7]比較例2～6のセラミックハニカムフィルタを示す模式断面図である。

### 発明を実施するための最良の形態

[0026] [1] セラミックハニカムフィルタ

#### (1) セラミックハニカムフィルタの構造

図1は、本発明のセラミックハニカムフィルタの一例を示す模式断面図である。セラミックハニカムフィルタは第一のセラミックハニカム構造体1Aと、第二のセラミックハニカム構造体1Bと、ハニカム構造体1A, 1Bを同軸に連結するとともにハニカム構造体1A, 1B内に形成された流路42を目封止する流入側目封止部50と、ハニカム構造体1Bの他端部を目封止する流出側目封止部52とからなる。

[0027] ハニカム構造体1A, 1Bの流路方向の垂直断面は略円状又は略楕円状である。ハニカム構造体1A, 1Bは外周壁20と、外周壁20の内周側に形成された複数の隔壁30とからなり、隔壁30によって複数の流路41, 42, 43が形成している。流路41, 42, 43は目封止部50, 52によって、交互に目封止されている。

[0028] ハニカム構造体1Aの排気ガス流入側の端面12は、開放されている。ハニカム構造体1Aの排気ガス流出側の端面と、ハニカム構造体1Bの排気ガス流入側の端面は、流路42に形成された目封止部50によって、隙間54を有するように接合されている。隙間54は0.1～10 mmであるのが好ましい。ハニカム構造体1A及びハニカム構造体1Bが0.1～10 mmの隙間54を有するように連結されると、ハニカム構造体1A, 1B及び目封止部50が熱膨張しても、破損が起こり難い。隙間54が0.1 mm未満であると、堆積物が隙間54に充满し、隙間が実質的になくなる虞がある。10 mm超であると、高温の排気ガスに直接触れる目封止部50の表面積が大きすぎるため、(a) 目封止部50の表面と内部とで熱膨張量の差が大きすぎ、及び／又は(b) 目封止部50の流路方向長さが断面積に比べて大きすぎために、破損する虞がある。より好ましい隙間54の幅は0.5～5mmであり、特に好ましい幅は1～3mmである。

[0029] ハニカム構造体1Aの端面12から目封止部50の端面51までの距離Xは、ハニカム構造体1A及びハニカム構造体1Bが連結してなるハニカムフィルタの流路方向の長さの

0.5倍以下であるのが好ましい。この距離Xが0.5倍超であると、ハニカム構造体1Bの隔壁32の面積が隔壁31と比べて少ないため、ハニカムフィルタ全体の初期圧力損失が上昇するおそれがあるからである。端面12から目封止部50の端面51までの距離Xは、1mm以上であるのが好ましい。流入側目封止部50の端面51が端面12から1mm以上離れていると、ハニカムフィルタの上流から排気ガスに燃料を添加した際に、ハニカム構造体1Aに担持された触媒によるフィルタ温度上昇効果を十分得ることができる。流入側目封止部50の端面51は、ハニカム構造体1Aの端面12からハニカムフィルタ11の全長の0.1~0.4倍の長さの区間にあるのがより好ましい。

[0030] 隔壁30及び／又は目封止部50, 52には触媒が担持されている。ハニカム構造体1Aと、ハニカム構造体1Bには、異なった性質を有する触媒を担持させてもよい。隔壁30及び／又は目封止部50, 52に担持される触媒は白金族の金属を含むのが好ましい。白金族の金属を含む触媒の例としてPt、Pd、Ru、Rh及びその組合せ、並びに白金族金属の酸化物が挙げられる。アルカリ土類金属の酸化物や希土類の酸化物等を含んでも良い。Pt等の触媒をγアルミナ等の活性アルミナからなる高比表面積材料に担持させると、触媒と排気ガスとの接触面積を大きくすることができ、排気ガスの浄化効率を高めることができることから好ましい。

[0031] ハニカム構造体1Aとハニカム構造体1Bには、異なった性質を有する触媒を担持させてもよい。また触媒ハニカム構造体1A及びハニカム構造体1Bに担持させる触媒の量が異なるようにしてもよい。例えば(a) 排気ガス流入側の隔壁31には、ハニカム構造体1A内における燃料の酸化反応を促進させるために白金族金属を高濃度で担持させ、(b) 排気ガス流出側の隔壁32には、それより低い濃度で白金族金属を担持させるのが好ましい。

[0032] ハニカム構造体1Aの隔壁31に燃料の酸化反応を促進する触媒、ハニカム構造体1Bの隔壁32に微粒子の燃焼反応を促進可能な触媒(助触媒)を担持しても良い。触媒の種類をこのようにすると、ハニカム構造体1A内においては燃料の酸化反応が促され、この反応熱によってハニカム構造体1Aの隔壁31に堆積した微粒子が燃焼する。生じた燃焼熱は排気ガス90, 91によってハニカム構造体1Bに送られ、ハニカム構造体1Bの隔壁32に担持された触媒により微粒子を効率よく燃焼させる。このように触媒

の作用により微粒子を燃焼させることによってハニカム構造体1A, 1Bの目詰まりを解消し、長期にわたって圧力損失を抑えることができる。

[0033] ハニカム構造体1Aに担持される触媒の例として前述の白金族金属を含む触媒、ハニカム構造体1Bに担持させる触媒の例として、高温微粒子燃焼触媒、典型的にはランタン、セシウム、バナジウム( $\text{La}/\text{Cs}/\text{V}_2\text{O}_5$ )からなるものが挙げられる。

[0034] 排気ガスは、流入側端面12で開口している流路41, 42から流入する。このうち流路42に流入した排気ガス91の流れは流入側目封止部50に遮られ、隔壁31中に形成された細孔(図示せず)を通過して隣接する流路41に入る。流路41に入ったガスは、流入側端面12から流入した排気ガス90とともに流路41を流出側端面13に向かって進行する。流路41の流出側端面13は封止されているので、隔壁32に形成された細孔(図示せず)を通過して隣接する流路である流路43に入り、流路43の開口端から排出される(ガス92)。流入側端面12から流入し、流出側端面13から流出までの間、排気ガス中の微粒子は隔壁31及び／又は32を通過するので、隔壁31, 32中の細孔(図示せず)に捕集される。したがって、ガス92は浄化済みである。

[0035] 内燃機関の排ガス処理装置内に設けられたハニカムフィルタの場合、内燃機関運転中にハニカムフィルタ上への微粒子の堆積量がある一定値以上になると、フィルタ上游で排気ガス中に燃料が添加され、微粒子を除去できるようになっているのが好ましい。

[0036] 図2は、ハニカムフィルタ再生工程におけるハニカムフィルタ内部の温度を概略的に示すグラフである。ハニカムフィルタの上流から添加された燃料は、ハニカム構造体1Aの隔壁31に担持された触媒によって酸化され、熱を発生させる。したがってハニカム構造体1A内では、下流の方が高温である。ハニカム構造体1A内で発生した熱は流入側目封止部50の上流に堆積した微粒子を燃焼させる。燃焼熱は排気ガス90, 91と共に下流に流れハニカム構造体1Bに伝わり、ハニカム構造体1B内に堆積した微粒子を燃焼させる。ハニカム構造体1Bに伝えられる燃焼熱は、微粒子を燃焼せるほどには大きくない場合も有りうるが、ハニカム構造体1B内の温度は少なくとも隔壁32に担持された触媒の活性化下限温度以上に高くなるので、触媒を活性化することによって隔壁32中の細孔に捕集された微粒子の燃焼が起こる。

[0037] なお、上述のように、ハニカム構造体1Aとハニカム構造体1Bとの間には隙間54があるので、隔壁31, 32が流路を流れる高温の排気ガスに直接接触することによって熱膨張しても、封止部50に生じる引張応力は小さく、封止部50の破損が起こり難い。したがって、ハニカムフィルタの破損や溶損の問題を回避しつつ隔壁31, 32の細孔に捕集した微粒子を燃焼し、圧力損失の上昇を防ぐことができる。

[0038] 図3(a)～(c)は、本発明のセラミックハニカムフィルタの別の例を示す。図3(a)に示すハニカムフィルタにおいては、ハニカム構造体1Aの端面12から各目封止部50の端面51までの距離Xが一様ではない。図3(b)に示すハニカムフィルタにおいては、様々な長さの目封止部50によってハニカム構造体1Aとハニカム構造体1Bが接合されている。距離Xもさまざまである。このように、供給された燃料をハニカム構造体1A内で十分昇温可能である限り、複数の封止部50の位置及び長さは特に限定されない。

[0039] 図3(c)に示すように、最も外側の流路において、ハニカム構造体1Aの排ガス流入側の端部に目封止部50を設けてよい。このような構造を有するハニカムフィルタの場合、最も外側の流路には排気ガスがほとんど流入しない。このため、最も外側の流路は断熱空間として作用し、ハニカムフィルタ内で発生した熱が外部に放出されるのを防ぐことができるので、ハニカムフィルタ内の温度を均一に保ち易い。

[0040] (2) セラミックハニカムフィルタの製造方法  
図4を用いて、セラミックハニカムフィルタの製造方法の一例を説明する。  
(i) ハニカム構造体  
隔壁31を有するハニカム構造体1Aと、側隔壁32を有するハニカム構造体1Bとを準備する。ここで、ハニカム構造体1A及びハニカム構造体1Bの隔壁の厚さ、隔壁のピッチは同じとする。

[0041] ハニカム構造体1A, 1Bの隔壁31, 32の気孔率は50～80%であるのが好ましい。隔壁31, 32の気孔率が50%未満であると、ハニカムフィルタの圧力損失が大きすぎてエンジンの出力が低下しすぎる。隔壁31, 32の気孔率が80%を超えると、隔壁31, 32の強度が小さ過ぎて、ハニカムフィルタ使用時の熱衝撃や機械的振動によって破損することがある。隔壁31, 32のより好ましい気孔率は60～75%である。

[0042] 隔壁31, 32の厚さは0.1～0.5 mmが好ましい。隔壁厚さが0.1 mm未満であると、ハ

ニカム構造体の強度が低過ぎる。一方、隔壁31, 32の厚さが0.5 mmを超えると、隔壁31, 32が高気孔率である場合でも排気ガスに対する隔壁の通気抵抗が大き過ぎ、ハニカムフィルタの圧力損失が大き過ぎる。より好ましい隔壁厚さは、0.2~0.4 mmである。隔壁31, 32のピッチは1.2 mm以上3mm未満であるのが好ましい。隔壁31, 32のピッチが1.2 mm未満であると、ハニカム構造体の入口の開口面積が小さ過ぎるため、ハニカムフィルタ入口の圧力損失が大き過ぎる。3mm以上であると、隔壁の表面積が小さ過ぎて、ハニカムフィルタの圧力損失が大き過ぎる。より好ましい隔壁31, 32のピッチは、1.3 mm以上2mm未満である。

[0043] 目封止部50と隔壁30, 32が接触している部分の流路方向の長さは、それぞれ2~10 mmとするのが好ましい。2mm未満とすると、目封止部50と隔壁32との接触面積を小さくせざるを得ないため、排気ガスの圧力によって目封止部50が抜け易すぎる。一方、10 mmより大きいと、流路方向の熱膨張量が大き過ぎ、目封止部50に生じる引張応力が大き過ぎる。

[0044] ハニカム構造体は、優れた耐熱性を有する材料からなるのが好ましい。優れた耐熱性を有する材料からなるハニカムフィルタは、ディーゼルエンジンの排気ガス中の微粒子を除去するためのフィルタとして好適である。具体的にはコーチェライト、アルミニウムライト、窒化珪素、炭化珪素及びLASからなる群から選ばれた少なくとも1種を主結晶とするセラミック材料が挙げられる。中でも、コーチェライトを主結晶とするセラミックハニカムフィルタは、安価であって耐熱性及び耐食性に優れている上、低熱膨張であるため、最も好ましい。

[0045] (ii) 目封止

ハニカム構造体1A及びハニカム構造体1Bの流路の端部に、可塑性を有する材料53を市松模様となるように挿入し、図4(b)に示すように、可塑性材料53によってハニカム構造体1A及び1Bを一体化する。このとき、ハニカム構造体1A及び1Bが接触しないように隙間54を設けておく。好ましい目封止材料は、ハニカム構造体の材料と同じである。

[0046] ハニカム構造体1Aに対向していない側のハニカム構造体1Bの端面13に樹脂製フィルムを貼り付け、可塑性材料53が挿入されていない流路を穿孔する。その後、樹脂

製フィルムが開口したハニカム構造体1Bの端部に、目封止材を含有するスラリーをその流路の端部に充填し、目封止部52を形成する。

[0047] スラリーに含まれる水分はハニカム構造体1Bの隔壁に吸水され、目封止材が隔壁に着肉する。着肉により保形性が得られるようになった後、固化していないスラリーを排出し、樹脂製フィルムを除去し、固化した目封止材の乾燥を行う。乾燥後に目封止部50, 52の焼成を行うと、隔壁31, 32と目封止部50, 52を一体化させることができる。

[0048] ハニカム構造体1A及びハニカム構造体1Bを一体化する際、隙間54が目封止材によって充填されないようにする必要がある。隙間54が目封止部50等によって充填されていると、ハニカム構造体1A及びハニカム構造体1Bの間に隙間がない場合と同じであるので、目封止部50, 52に引張応力が生じ、本発明の効果は減少する。

[0049] なお、(a) ハニカム構造体1A及び1Bを一体化した後、外周にセラミックコーティング材を塗布して外周壁20を形成してもよいし、(b) ハニカム構造体1A及び1Bの外周部を加工により除去し、外周部に軸方向に凹溝を有するハニカム構造体とした後で一体化し、更に凹溝にセラミックコーティング材を埋め込んで外周壁を形成しても良い。また(c) 外周部の加工をハニカム構造の成形体の段階で行った後で焼成し、外周部に軸方向に凹溝を有するハニカム構造体とした後、両ハニカム構造体を一体化し、更に凹溝にセラミックコーティング材を埋め込んで外周壁を形成しても良い。なお、セラミックコーティング材は、ハニカム構造体と同一のセラミック粒子と、コロイド状酸化物等の無機バインダーからなるのが好ましい。セラミックコーティング材がこのような組成を有すると、ハニカム構造体と一体化し、コーティング材とハニカム構造体間における熱膨張等の材料特性の違いによる剥離等の問題を極力小さくできる。

### [0050] (iii) 触媒の担持

触媒を含有するスラリーに、ハニカム構造体1A及び1Bを一体化した構造体を浸漬する。浸漬後、乾燥及び焼成すると、隔壁31, 32の表面及び隔壁31, 32内部の細孔に触媒が付着する。

[0051] ハニカム構造体1Aとハニカム構造体1Bに別々の触媒を担持させる場合、ハニカム構造体1A用のスラリーには、端面12が下側になるようにしてハニカム構造体1Aのみを浸漬し、ハニカム構造体1B用のスラリーには、端面13が下側になるようにしてハニ

カム構造体1Bのみを浸漬するのが好ましい。

[0052] ハニカム構造体1Aとハニカム構造体1Bの間には隙間54があるので、触媒の塗り分けを確実に行うことができる。つまり、隙間54を設けることによって、ハニカム構造体1Aに担持させるべき触媒がハニカム構造体1Bにも付着してしまうのを防ぐことができる。ハニカム構造体1A用の触媒は高価であるので、隙間54によって経済的に有利な効果も得られることになる。

[0053] [2] 排気ガス装置

図5は、本発明の排気ガス装置を概略的に示す断面図である。この排気ガス装置は筒状のシェル60と、流路がシェル60の長手方向になるようにシェル60に入れられたセラミックハニカムフィルタ11と、セラミックハニカムフィルタ11より上流に設けられた燃料添加手段85とを有する。

[0054] シェル60は円筒状の本体部と、本体部60aから延在し、本体部60aより小さな径を有する端部とからなる。シェル60の一端部は排気ガスの入口61となっており、他端部は出口62となっている。

[0055] ハニカムフィルタ11はシェル60の本体部60a内に、ハニカム構造体1Aが入口61側でハニカム構造体1Bが出口62側になるように内蔵されている。シェル60とハニカムフィルタ11との間には、断熱材70が入れられている。

[0056] 燃料添加手段85は、入口61内で開口するように設けられている。燃料添加手段85は、ハニカム構造体1Aの端面12側からシェル60内に流入する排気ガスに燃料を添加するようになっている。添加する燃料は内燃機関用の燃料と同じでもよいし、内燃機関用以外の燃料でもよい。内燃機関用の燃料の例としては軽油が挙げられる。内燃機関用以外の燃料の例としては炭化水素が挙げられる。

[0057] 排気ガスは入口61から流入し、ハニカム構造体1A及びハニカム構造体1Bの流路を通過し、出口62から流出する。ハニカム構造体1A及びハニカム構造体1Bの端部には、目封止部50, 52が設けられているので、隔壁31, 32及び／又は目封止部50, 52を透過する必要がある。したがって隔壁31, 32及び／又は目封止部50, 52を透過する際に、排気ガスに含まれる微粒子がそれらの細孔に捕集される。

[0058] 内燃機関運転中にハニカムフィルタ11に微粒子が一定量以上堆積すると、燃料添

加手段85により、シェル60中に燃料が供給される。ハニカム構造体1Aの隔壁31には白金等の酸化触媒が担持されているので、燃料の酸化反応によって反応熱が生じ、排気ガスの温度を上昇させる。昇温された排気ガスはハニカム構造体1Bに入り、ハニカム構造体1Bの隔壁32の細孔に捕集された微粒子を燃焼させる。このように、燃料と触媒との反応によって微粒子を有効に燃焼し、微粒子の堆積によって隔壁の細孔が閉塞するのを防ぎ、圧力損失の上昇を起こり難くすることができる。したがって、長期にわたりハニカムフィルタの圧力損失を上昇を防止することができる。

[0059] ハニカム構造体1Aとハニカム構造体1Bとの間には、隙間54があるので、高温の排気ガスが流路を流れることによって隔壁が熱膨張しても、ハニカム構造体1Aとハニカム構造体1Bの接触による破損が起こり難い。また目封止部50に生じる引張応力が比較的小さいので、運転開始直後や、燃料添加の直後の熱衝撃による目封止部50, 52及び隔壁31, 32の破損が起こり難く、長期に安定して使用できる。

[0060] [3] 排気ガス浄化方法

本発明の排気ガス浄化方法においては、ハニカムフィルタに蓄積した微粒子がある一定値以上になると、ハニカムフィルタ上流から排気ガス中に燃料を添加する。添加した燃料は、ハニカム構造体1Aの隔壁31に担持された触媒によって酸化し、反応熱を発生して排気ガスの温度を上昇させる。昇温した排気ガスは、隔壁31及び／又は目封止部50を通過してハニカム構造体1Bに入るため、ハニカム構造体1Bの隔壁32に接触する排気ガスは高温であり、ハニカム構造体1B内は隔壁32等に担持された触媒の活性下限温度以上になる。したがって触媒の活性度が高まり、触媒の作用によって排気ガス中の微粒子を燃焼し、ハニカムフィルタの目詰まりを解消して圧力損失の上昇を防ぐことができる。

[0061] また排気ガス浄化方法に用いるハニカムフィルタは、ハニカム構造体1Aとハニカム構造体1Bとを隙間54をもって接合したものである。そのためハニカム構造体1A及びハニカム構造体1Bの隔壁31, 32が高温の排気ガスとの接触によって熱膨張しても、流路方向に生じる圧縮応力が小さい。したがって目封止部に生じる引張応力が小さいので、運転開始直後や燃料添加の直後に熱衝撃が加わっても隔壁31, 32の破損が生じ難く、長期に安定して排気ガスを浄化することができる。

## 実施例

[0062] 本発明を以下の実施例によってさらに詳細に説明するが、本発明はそれらに限定されるものではない。

[0063] 実施例1～5

[0064] カオリン、タルク、シリカ、水酸化アルミ、アルミナ等の粉末を調整して、質量比で、 $\text{SiO}_2$ :47～53%、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ :32～38%、 $\text{MgO}$ :12～16%、及び $\text{CaO}$ 、 $\text{Na}_2\text{O}$ 、 $\text{K}_2\text{O}$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\text{PbO}$ 、 $\text{P}_2\text{O}_5$ 等の不可避的に混入する成分を全体で2.5%以下を含むようなコージェライト生成原料粉末を得、成形助剤と造孔剤を添加し、規定量の水を注入して更に十分な混合を行い、ハニカム構造に押出成形可能な坯土を調整した。次に、公知の押出成形用金型を用い押出成形し、外周壁20と、この外周壁20の内周側で隔壁30により囲まれた断面が四角形状の流路を有するハニカム構造の成形体を作製し、乾燥後焼成を行って、隔壁のピッチ1.5 mmで、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mmとなる排気ガス流入側隔壁31を有するハニカム構造体1A、及び排気ガス流出側隔壁32を有するハニカム構造体1Bを作製した。

[0065] 排気ガス流入側の目封止部50を形成するため、可塑性を有する目封止材を準備し、ハニカム構造体1A及びハニカム構造体1Bの端部からそれぞれの流路に市松模様となるよう挿入して流入側目封止部50を形成し、ハニカム構造体1A及び1Bを一体化した。このとき、ハニカム構造体1A及び1Bが接触せぬよう隙間54を設けた。一方、ハニカム構造体1Bの他方の端面13に樹脂製フィルムを貼り付け、流入側目封止部50と交互になるようにフィルムを開口し、流路にスラリー状の目封止材を導入してハニカム構造体1Bの流路の端部に充填した。目封止材が固化した後、樹脂製フィルムを除去し、目封止材を乾燥及び焼成し、隔壁と目封止部を一体化させた。これにより、表1に示す構造のハニカムフィルタ11が得られた(実施例1～5)。

[0066] 各ハニカムフィルタについて、封止部50の排気ガス流入側端面51からハニカムフィルタ端面12の間の距離X(mm)を測定した。具体的には、排気ガス流入側端面12から直径約0.8 mm長さ300 mmの金属棒を差込み、ハニカムフィルタから出た金属棒の長さを読みとった。なお一個のハニカムフィルタについて、20本の流路を任意に選択

して距離Xを計測し、その平均値を求めた。

[0067] 実施例1～5のハニカムフィルタの排気ガス流入側端面51とハニカムフィルタ端面12の間の距離X(mm) 及び $X/(ハニカムフィルタの全長L)$ の値を表1に示す。またハニカム構造体1Aとハニカム構造体1Bの間の隙間54の長さも、表1に併せて示す。

[0068] Pt、酸化セリウム及び活性アルミナからなる触媒A(Ptの担持量2g/L:ハニカムフィルタ容積1Lに対して2g担持の意味。)を各ハニカムフィルタの隔壁31, 32の表面及び細孔、更には目封止部50, 52の表面及び細孔に担持させた。

[0069] 実施例1～5のハニカムフィルタを圧力損失試験装置(図示せず)に設置し、空気流量 $7.5 \text{ Nm}^3/\text{min}$ の条件で空気を流入し、流入側端面12と流出側端面13の差圧を測定し、各ハニカムフィルタの初期圧力損失を評価した。この初期圧力損失は、次に述べる比較例1のセラミックハニカムフィルタの初期圧力損失を1として、相対値で示した。

[0070] 実施例1～5のハニカムフィルタをディーゼルエンジンの排気管に配置し、市街地走行を模したパターン走行条件で耐久試験を行った。耐久試験の際、排気ガス温度が触媒の活性下限温度を下まわるような運転状態が続くような場合を発生させ、微粒子がフィルタ上に僅かに堆積するような条件を作り出し、この運転状態に応じてハニカムフィルタへの微粒子の堆積量を推定し、推定量が一定値以上なった時点でフィルタの上流側に燃料を未燃のまま噴射し、フィルタの強制的再生を行った。

[0071] 10,000 km走行に相当する時間経過まで試験が継続できたものを判定合格(○)とし、継続できなかったものを判定不合格(×)とし、判定合格だったものについては、10,000 km走行に相当する時間経過後のハニカムフィルタの圧力損失を初期圧力損失と同様に測定し、初期圧力損失と比較して、圧力損失比:(試験後の圧力損失)/(初期圧力損失)を算出した。

[0072] 比較例1

実施例1～5と同様の方法を採用して、隔壁のピッチ1.5 mmで、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mm、全長304.8 mmのハニカム構造体を作製した。次に、このハニカム構造体の両端面にマスキングフィルムを貼りつけた後、両端面の流路が交互に開口するよう市松模様に穿孔し、スラリー状の目

封止材を充填し、乾燥及び焼成して目封止部52とし、両端部に交互に目封止部50, 52を有する図6に示すハニカムフィルタを作製した。

[0073] 比較例2～6

実施例1～5と同様の方法を採用して、隔壁のピッチ1.5 mmで、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mm、全長304.8 mmのハニカム構造体を作製した。ハニカム構造体の排気ガス流入側端面12から離れた箇所に市松模様に目封止材スラリーを充填して流入側目封止部50を形成し、排気ガス流出側端面13には、流入側目封止部50と交互になるように、流出側目封止部52を形成した。図7に示す形態を有するハニカムフィルタが得られた(比較例2～6)。

[0074] 実施例1～5と同様に、各ハニカムフィルタの隔壁30及び目封止部50, 52にPt、酸化セリウム及び活性アルミナからなる触媒A(Ptの担持量2g/L)を担持させた。その後、実施例1～5と同様の圧力損失試験及び耐久試験を行った。

[0075] 実施例6

実施例2と同様の方法で、隔壁のピッチ1.5 mmで、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mm、全長96.4 mmのハニカム構造体1A及び隔壁のピッチ1.5 mmで、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mm、全長208.3 mmのハニカム構造体1Bを作製した。ハニカム構造体1A及びハニカム構造体1Bの流路の端部に、可塑性を有する目封止材を含有するスラリーを市松模様となるよう挿入した後、ハニカム構造体1Aと1Bの隔壁の間に0.1 mmの隙間54が形成されるよう、ハニカム構造体1A及び1Bを一体化した。

[0076] ハニカム構造体1Bのもう一方の端面13に樹脂製フィルムを貼り付け、流入側目封止部50と交互になるようフィルムに穿孔し、スラリー状の目封止材を導入してハニカム構造体の流路の一部に充填し、固化した。その後、樹脂製フィルムを除去し、目封止部の乾燥及び焼成を行い、隔壁と目封止部を一体化させ、ハニカム構造体1A及びハニカム構造体1Bを一体化させた。このハニカムフィルタの排気ガス流入側隔壁31及び目封止部50にPt、酸化セリウム及び活性アルミナからなる触媒A(Ptの担持量2g/L)を担持させた後、実施例1～5と同様の圧力損失試験及び耐久試験を行った。

[0077] 比較例7

比較例3と同様の方法で、隔壁のピッチ1.5 mmで、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mm、全長304.8 mmのハニカム構造体を作製した。このハニカム構造体の流入側端面12から91.4 mmの位置に、目封止部50を配置した。排気ガス流入側隔壁31にPt、酸化セリウム及び活性アルミナからなる触媒A(Ptの担持量2g/L)を担持させた後、実施例1～5と同様の耐久試験を行った。またハニカムフィルタに担持した触媒の重量を表2に実施例6との相対値で示した。

[0078] 実施例7

実施例2と同様の方法により、隔壁のピッチ1.5 mmで、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mm、全長96.9 mmのハニカム構造体1A及び隔壁のピッチ1.5 mmで、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mm、全長206.9 mmのハニカム構造体1Bを作製した。また隙間54が1mmになるように目封止部50を用いて一体化し、ハニカム構造体1Bのもう一方の端面13に、目封止部50と交互になるように目封止部52を形成した。

[0079] ハニカム構造体1A及び目封止部50に、酸化セリウム及び活性アルミナの担持量は触媒Aと同じで、Ptの担持量は4g/Lになるように、Pt、酸化セリウム及び活性アルミナを担持させた(触媒B)。またハニカム構造体1B及び目封止部52に、酸化セリウム及び活性アルミナの担持量は触媒A及び触媒Bと同じで、Ptの担持量は1g/Lとなるように、Pt、酸化セリウム及び活性アルミナを担持させた(触媒C)。その後、実施例1～5と同様にして、圧力損失試験及び耐久試験を行った。

[0080] 比較例8

比較例3と同様の方法で、隔壁のピッチ1.5 mmで、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mm、全長304.8 mm、排気ガス流入側の目封止部が、フィルタ端面から91.4 mmの位置に配置した。このハニカムフィルタの排気ガス流入側隔壁31、目封止部50、排気ガス流出側隔壁32及び目封止部52に実施例7と同じ組成比及び担持量になるように触媒を担持させた。実施例1～5と同様の圧力損失試験及び耐久試験を行った。またハニカムフィルタに担持した触媒の重量を、実施例6との相対値で表2に示した。

[0081] 実施例8～12

実施例6と同様の方法で、隔壁のピッチ1.5 mm、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mm、各種全長を有するハニカム構造体1A及び隔壁のピッチ1.5 mmで、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mm、各種全長を有するハニカム構造体1Bを作製した。ハニカム構造体1A及び1Bを0.5～12 mmの隙間54が形成し、流路が市松模様に目封止されるように流入側目封止部50によって一体化し、ハニカム構造体1Bの端面13を流入側目封止部50と交互になるよう目封止した。ハニカム構造体1A、目封止部50、ハニカム構造体1B及び目封止部52には実施例7と同じ組成比及び担持量になるように触媒を担持させた。

[0082] 各ハニカムフィルタについて、実施例1～5と同様の圧力損失試験及び耐久試験を行った。また排気ガス流入側端面12から2MPaの高圧水を注水して、流入側目封止部50の隔壁31、32に対する接合強度を評価し、流入側目封止部50が隔壁31、32から剥離した流入側目封止部51の個数割合が1%未満の場合を(○)、1%以上5%未満の場合を(△)、5%以上の場合を(×)として判定した。結果を表2の目封止圧力試験の欄に示す。

[0083] 実施例13

実施例6と同様の方法により、隔壁のピッチ1.5 mmで、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mm、全長96.9 mmのハニカム構造体1Aと、隔壁のピッチ1.5 mmで、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mm、全長206.9 mmのハニカム構造体1Bとを作製した。1mmの隙間54が形成され、流路が市松模様に目封止されるように、ハニカム構造体1A及び1Bを流入側目封止部50によって一体化した。またハニカム構造体1Bのもう一方の端面13の流路を流入側目封止部50と交互に目封止した。ハニカム構造体1A及び目封止部50には、酸化セリウム及び活性アルミナの担持量は触媒A、触媒B及び触媒Cと同じで、Ptの担持量は3g/Lになるように、Pt、酸化セリウム及び活性アルミナを担持させた(触媒D)。またハニカム構造体1B及び目封止部52にはランタン、セシウム及び酸化バナジウムからなる触媒Eを担持させた。その後、実施例8～12と同様の圧力損失試験、耐久試験及び排気ガス流入側目封止部の隔壁との目封止圧力試験を行つ

た。

[0084] 比較例9

比較例8と同様の方法で、隔壁のピッチ1.5 mmで、隔壁厚さ0.3 mmの隔壁構造を有し、隔壁の気孔率が65%であり、直径267 mm、全長304.8 mmのハニカムフィルタを得、フィルタ端面から91.4 mmの位置に排気ガス流入側の目封止部を配置した。このハニカムフィルタの排気ガス流入側隔壁31、目封止部50、隔壁32及び目封止部52に実施例13と同じ組成比及び担持量になるように触媒を担持させた後、実施例8～12と同様の圧力損失試験を行い、耐久試験及び排気ガス流入側目封止部の隔壁との目封止圧力試験を行った。

[0085] 実施例1～13及び比較例1～9のセラミックハニカムフィルタを電気炉内で室温から設定温度まで加熱し、設定温度で2時間保持した後に電気炉外に取り出し、クラックの有無を観察した。クラックが生じた温度の下限を耐熱衝撃温度として表1及び2に併せて示す。

[0086] [表1]

	ハニカム フィルタ 全長 L (mm)	ハニカム 構造体15 全長 (mm)	ハニカム 構造体16 全長 (mm)	X (mm)	X/L	隔壁の 隙間 (mm)	流入側 目封止部 長さ (mm)	初期 圧力 損失	耐久試験結果		耐熱 衝撃 温度 (°C)
									判定	圧力損失比	
実施例1	304.8	56.0	247.8	51.0	0.17	1	12	1	○	1.2	575
実施例2	304.8	86.4	207.4	91.4	0.30	1	12	1.05	○	1.1	550
実施例3	304.8	126.9	176.9	121.9	0.40	1	12	1.05	○	1.1	575
実施例4	304.8	163.5	139.3	158.5	0.52	2	12	1.1	○	1.2	550
実施例5	304.8	225.0	77.8	220.0	0.72	2	12	1.2	○	1.4	550
比較例1	304.8	—*	—*	0.0	0	無し	12	1	×	—**	500
比較例2	304.8	—*	—*	51.0	0.17	無し	12	1	○	1.2	500
比較例3	304.8	—*	—*	91.4	0.30	無し	12	1.05	○	1.1	500
比較例4	304.8	—*	—*	121.9	0.40	無し	12	1.05	○	1.1	475
比較例5	304.8	—*	—*	158.5	0.52	無し	12	1.1	○	1.2	500
比較例6	304.8	—*	—*	220.0	0.72	無し	13	1.2	○	1.4	500

注 —\*:該当する値がないため、測定せず。

—\*\*:判定が「×」であったため、測定せず。

[0087] [表2]

	ハニカム フィルタ 全長 L	ハニカム 構造体15 全長	ハニカム 構造体16 全長	X	X/L	隔壁の 隙間	流入側 目封止部 長さ	触媒物質		初期 圧力 損失	耐久試験結果		耐熱 衝撃 温度	目封止 圧力 試験	触媒使用量
	(mm)	(mm)	(mm)	(mm)		(mm)	(mm)	排気ガス 流入側 隔壁	排気ガス 流出側 隔壁	判定	圧力 損失比	(°C)			
実施例6	304.8	96.4	208.3	91.4	0.30	0.1	12	A	—	1.05	○	1.1	550	—**	—
比較例7	304.8	—*	—*	91.4	0.30	無し	12	A	—	1.05	○	1.1	500	—**	実施例6対比1.1
実施例7	304.8	96.9	206.9	91.4	0.30	1	12	B	C	1.05	○	1.05	575	—**	—
比較例8	304.8	—*	—*	91.4	0.30	無し	12	B	C	1.05	○	1.1	500	—**	実施例7対比1.2
実施例8	304.8	97.15	207.15	91.4	0.30	0.5	12	B	C	1.05	○	1.05	550	○	実施例7対比1.05
実施例9	304.8	95.9	205.9	91.4	0.30	3	12	B	C	1.05	○	1.05	550	○	実施例7対比0.98
実施例10	304.8	94.9	204.9	91.4	0.30	5	12	B	C	1.05	○	1.1	575	○	実施例7対比0.98
実施例11	304.8	94.4	200.4	91.4	0.30	10	18	B	C	1.05	○	1.1	575	○	実施例7対比0.98
実施例12	304.8	93.4	199.4	91.4	0.30	12	16	B	C	1.05	○	1.1	540	△	実施例7対比0.98
実施例13	304.8	96.9	206.9	91.4	0.30	1	12	D	E	1.05	○	1.02	575	○	—
比較例9	304.8	—*	—*	91.4	0.30	無し	12	D	E	1.05	○	1.05	500	○	実施例13対比1.2

注 —\* :該当する値がないため、測定せず。

—\*\*:測定せず。

[0088] 実施例1～5のハニカムフィルタの初期圧力損失は、従来技術である比較例1のセラミックハニカムフィルタの1～1.2倍程度であった。また10,000 km走行に相当する耐久試験では全て判定合格(○)であって、圧力損失比は1.1～1.4であることから、圧力損失が上昇し難かった。更に耐熱衝撃温度は550～575°Cであり、熱衝撃にも優れていた。このうち実施例2及び3は、全長Lに対する流入側目封止部50の形成位置Xの比X/Lが0.2～0.4であるため、初期圧力損失が小さく、耐久試験後の圧力損失も小さかった。このことから、X/Lは0.2～0.4であるのが好ましいことが確認された。

[0089] 比較例1のハニカムフィルタは、10,000 km走行に相当する耐久試験では、約5,000 km走行に相当する時間で排圧が急上昇し、再生不能となり試験を中断したため、判定は不合格(×)であった。

[0090] 比較例2～6のハニカムフィルタは、初期圧力損失及び、且つ10,000 km走行に相当する耐久試験結果は、ほぼ実施例1～5のハニカムフィルタと一致した。流入側目封止部端面が排気ガス流入側端面から離れて配置されており、隔壁及び／又は目封止部に触媒が担持されているためであると考えられる。但し、耐熱衝撃温度は475～500°Cであり、実施例1～5に比べて低かった。これは排気ガス流入側隔壁と排気ガス流出側隔壁の間に隙間が存在しないためであると考えられる。

[0091] 実施例6のハニカムフィルタの初期圧力損失は、比較例1のセラミックハニカムフィルタの1.05倍であった。また10,000 km走行に相当する耐久試験では全て判定合格(○)であって、圧力損失比は1.1であり、圧力損失が上昇しにくいことがわかった。更に耐熱衝撃温度は550°Cであり、熱衝撃にも優れていることがわかった。

[0092] 比較例7のハニカムフィルタの初期圧力損失、10,000 km走行に相当する耐久試験、圧力損失比はいずれも良好であった。但し、耐熱衝撃温度は500°Cと実施例6に比べて低い上、使用した触媒の量が実施例6に対して1.1倍であり、高価な触媒の使用量が多いという不具合がある。これは排気ガス流入側隔壁と排気ガス流出側隔壁の間に隙間が存在しないためであると考えられる。

[0093] 実施例7のハニカムフィルタの初期圧力損失は、比較例1のハニカムフィルタの1.05倍であった。また10,000 km走行に相当する耐久試験では全て判定合格(○)であって、圧力損失比は1.05であり、圧力損失が上昇しにくいことがわかった。また実施例2のハニカムフィルタに比べ、排気ガス流入側隔壁の白金濃度が高いことから、この部分での未燃燃料等の燃焼酸化反応が促進されるため、耐久試験での圧力損失が小さかった。更に耐熱衝撃温度は570°Cであり、熱衝撃にも優れていることがわかった。

[0094] 比較例8のハニカムフィルタは初期圧力損失、10,000 km走行に相当する耐久試験及び圧力損失比のいずれも良好であった。但し、耐熱衝撃温度は500°Cであり、実施例7に比べて低い上、使用した触媒の量が実施例7の1.2倍であり、高価な触媒の使用量が多いという不具合があった。これは排気ガス流入側隔壁と排気ガス流出側隔壁の間に隙間が存在しないためであると考えられる。

[0095] 実施例8～12のハニカムフィルタの初期圧力損失は、比較例1のセラミックハニカムフィルタの1.05倍であった。また10,000 km走行に相当する耐久試験では全て判定合格(○)であって、圧力損失比は1.05～1.1であり、圧力損失が上昇しにくいことがわかった。なお実施例8～11のハニカムフィルタは目封止圧力試験での判定は(○)であったのに対し、実施例12のハニカムフィルタの判定は(△)であったことから、目封止と隔壁との接合長さは2mm以上が好ましいことがわかった。

[0096] 実施例13のセラミックハニカムフィルタの初期圧力損失は、比較例1のハニカムフィルタの1.05倍であった。また10,000 km走行に相当する耐久試験では全て判定合格(○)であって、圧力損失比は1.02であり、圧力損失が上昇しにくいことがわかった。また耐久試験での圧力損失比は最も低い1.02であって、耐熱衝撃温度は575°Cであり、熱衝撃にも優れていることがわかった。これは燃料の酸化反応が促進される触媒を排気ガス流入側隔壁に担持し、微粒子の燃焼を促進する触媒を排気ガス流出側隔

壁に担持しているためであると考えられる。

[0097] 比較例9のハニカムフィルタの初期圧力損失、10,000 km走行に相当する耐久試験及び圧力損失比のいずれも良好であった。但し、耐熱衝撃温度は500°Cと低い上、使用した触媒の量が実施例13の1.2倍であり、高価な触媒の使用量が多いという不具合があった。これは排気ガス流入側隔壁と排気ガス流出側隔壁の間に隙間が存在しないためであると考えられる。

## 請求の範囲

[1] 隔壁により仕切られた多数の流路を有する複数の多孔質セラミックハニカム構造体が流路方向に接合され、所望の流路が目封止され、前記隔壁に形成された細孔が排気ガスに通過されるセラミックハニカムフィルタにおいて、少なくとも一つのハニカム構造体の隔壁と、このハニカム構造体に隣接するハニカム構造体の隔壁とが目封止部で流路方向に隙間を有するように接合されており、前記隔壁及び／又は目封止部の少なくとも一部に触媒が担持されていることを特徴とするセラミックハニカムフィルタ。

[2] 請求項1に記載のセラミックハニカムフィルタにおいて、前記隙間が0.1～10 mmであることを特徴とするセラミックハニカムフィルタ。

[3] 請求項1又は2に記載のセラミックハニカムフィルタにおいて、前記目封止部より前記排気ガスの流入側にある前記多孔質セラミックハニカム構造体の前記隔壁の少なくとも一部に、前記触媒が担持されていることを特徴とするセラミックハニカムフィルタ。

[4] 請求項1～3のいずれかに記載のセラミックハニカムフィルタにおいて、前記目封止部より前記排気ガスの流入側にある隔壁の少なくとも一部と、前記排気ガスの流出側にある隔壁の少なくとも一部とに、異なる特性を有する触媒が担持されていることを特徴とするセラミックハニカムフィルタ。

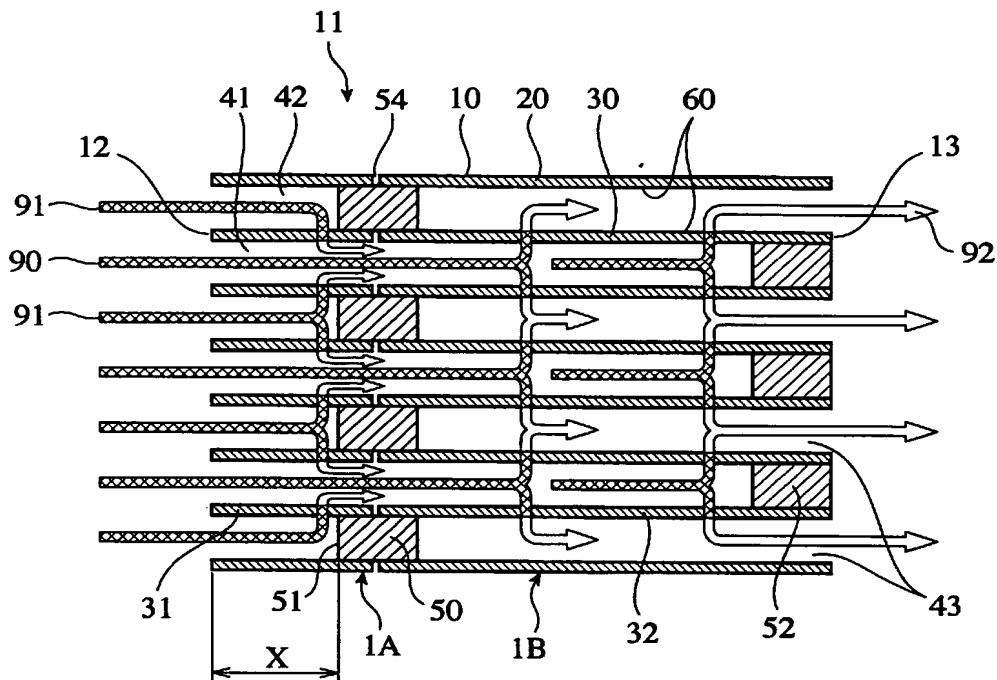
[5] 請求項1～4のいずれかに記載のセラミックハニカムフィルタにおいて、前記複数の多孔質セラミックハニカム構造体を接合する目封止部の端面が、前記セラミックハニカムフィルタの流入側端面から前記セラミックハニカムフィルタの全長の0.5倍以下の長さの区間にあることを特徴とするセラミックハニカムフィルタ。

[6] 隔壁により仕切られた多数の流路を有する複数の多孔質セラミックハニカム構造体が流路方向に接合され、所望の流路が目封止され、前記隔壁に形成された細孔が排気ガスに通過されるセラミックハニカムフィルタと、前記セラミックハニカムフィルタの上流に設けられた燃料添加手段とを有する排気ガス浄化装置において、少なくとも一つのハニカム構造体の隔壁と、このハニカム構造体に隣接するハニカム構造体の隔壁とが目封止部で流路方向に隙間を有するように接合されており、前記隔壁及び

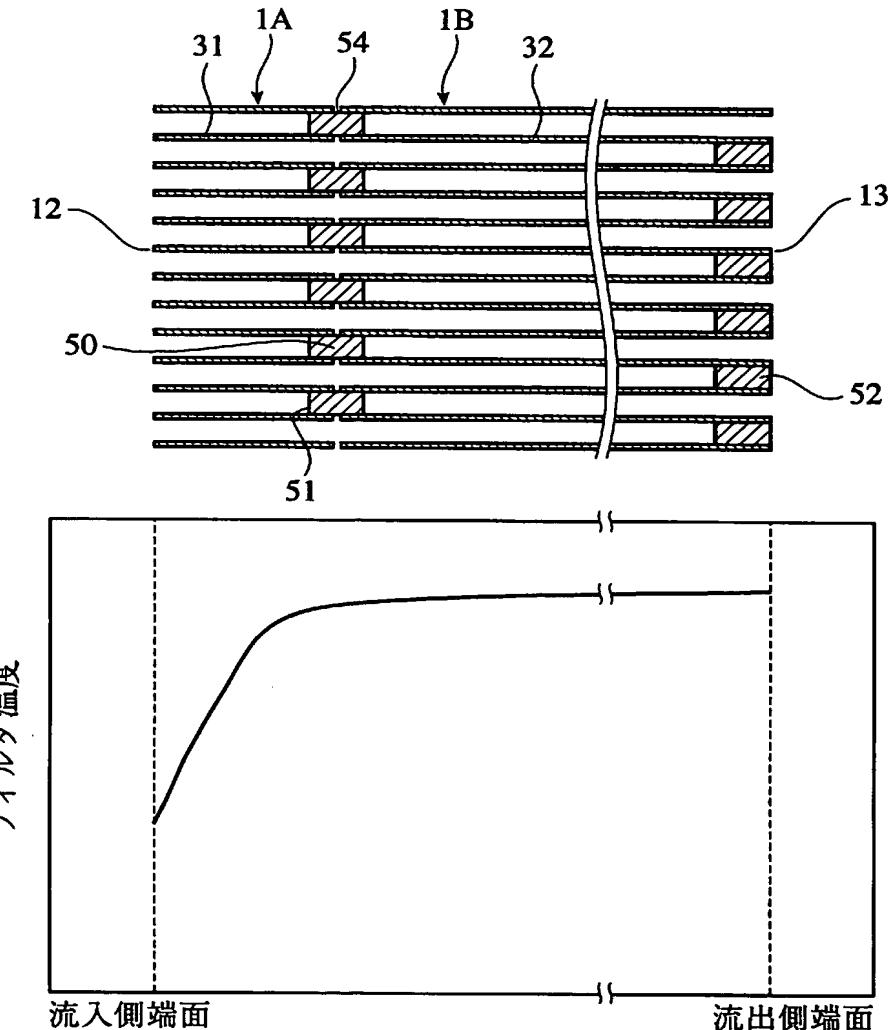
／又は目封止部の少なくとも一部に触媒が担持されていることを特徴とする排気ガス浄化装置。

[7] 隔壁により仕切られた多数の流路を有するセラミックハニカムフィルタの前記流路に排気ガスを流入させる排気ガス浄化方法において、前記セラミックハニカムフィルタとして、少なくとも一つのハニカム構造体の隔壁と、このハニカム構造体に隣接するハニカム構造体の隔壁とが目封止部で流路方向に隙間を有するように接合されており、所望の流路が目封止されており、前記隔壁及び／又は目封止部の少なくとも一部に触媒が担持されたものを用い、前記セラミックハニカムフィルタの上流側で前記排気ガス中に燃料を添加し、前記セラミックハニカムフィルタの目封止部と、前記目封止部の排気ガス流出側にある多孔質セラミックハニカム構造体の少なくとも一部の温度を前記触媒の活性下限温度以上にすることを特徴とする排気ガス浄化方法。

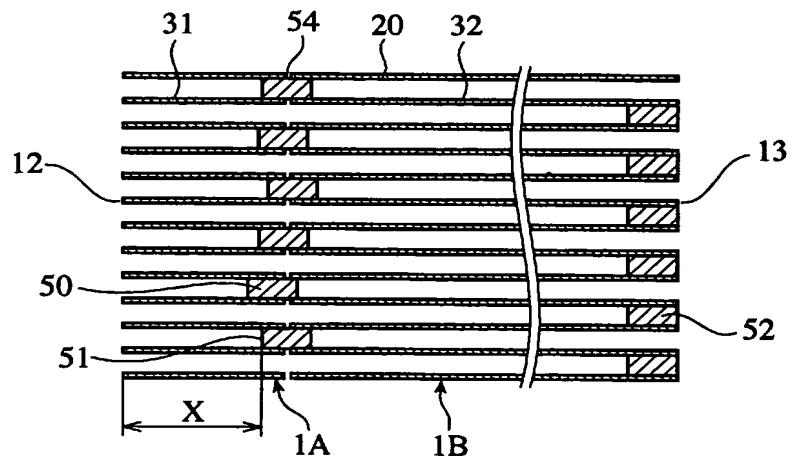
[図1]



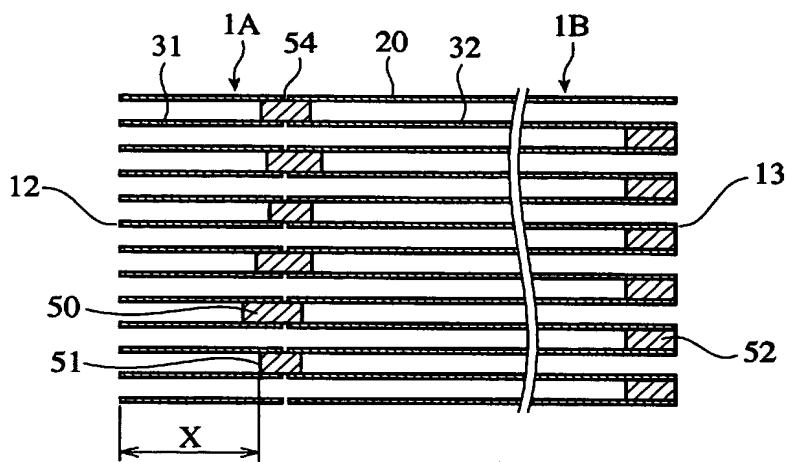
[図2]



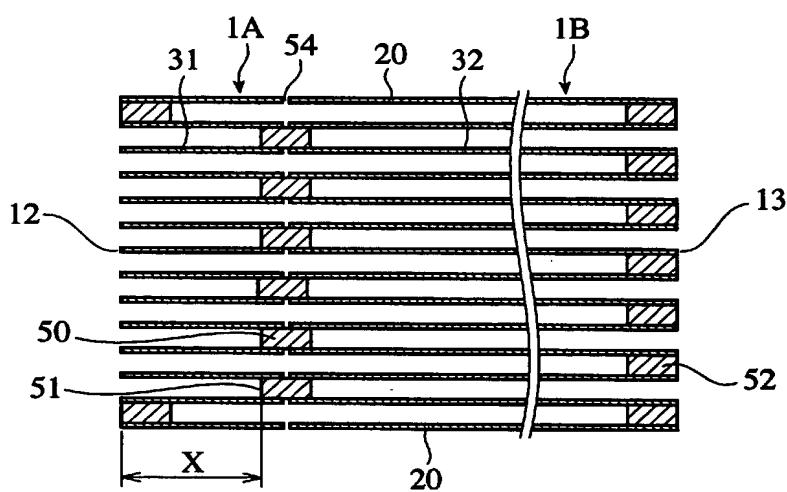
[図3(a)]



[図3(b)]

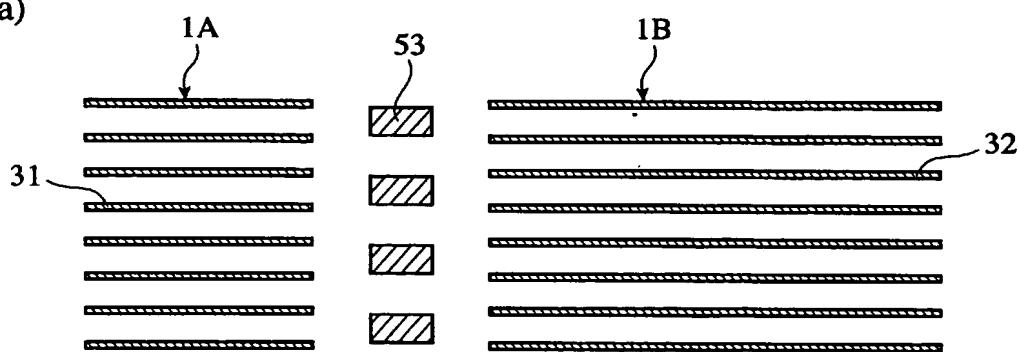


[図3(c)]

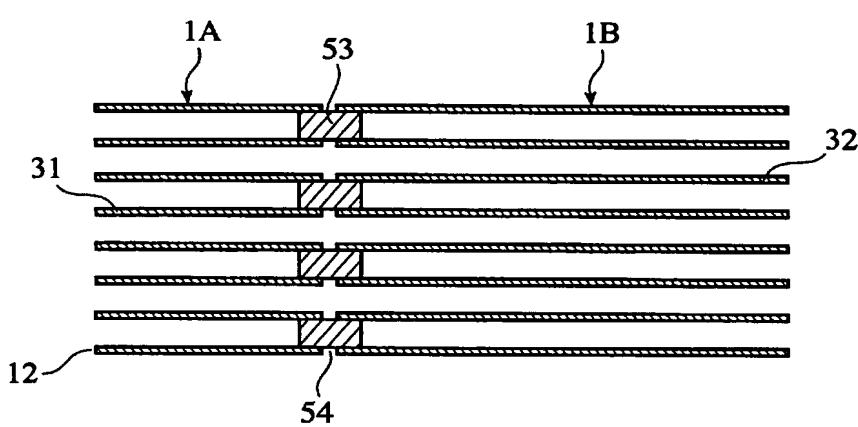


[図4]

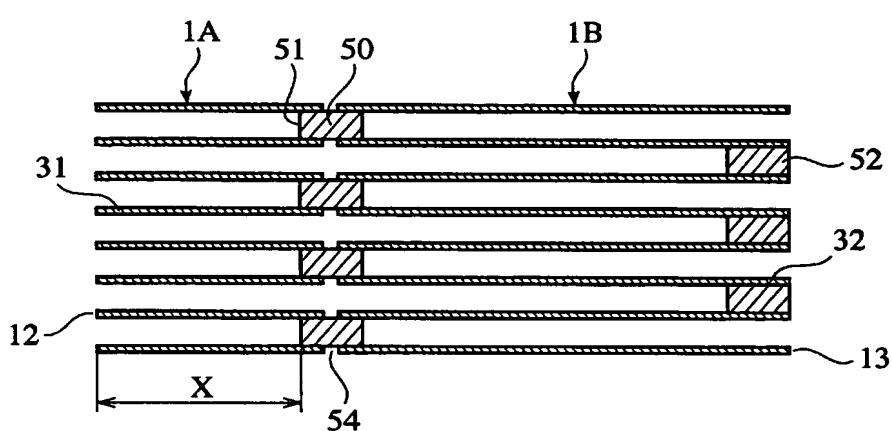
(a)



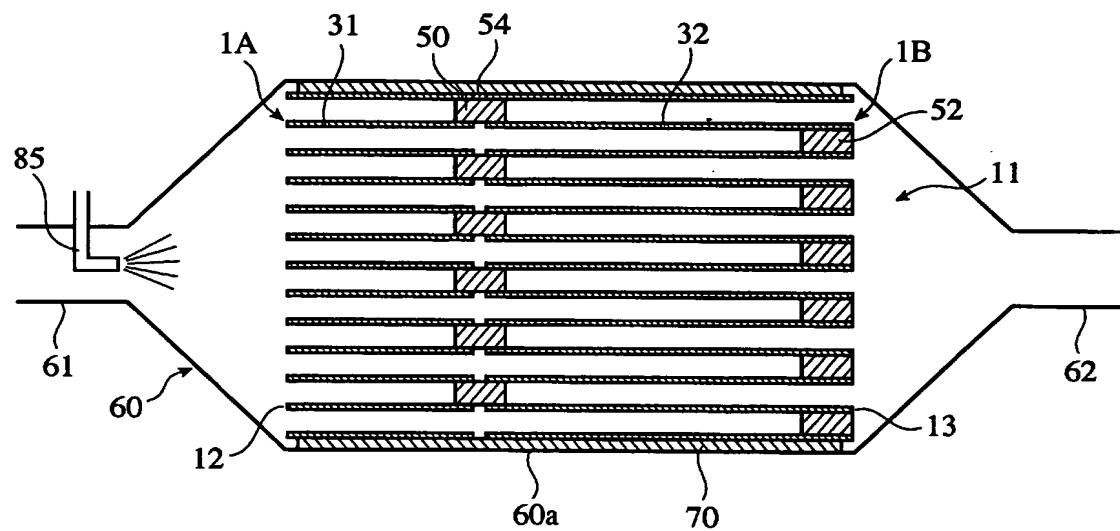
(b)



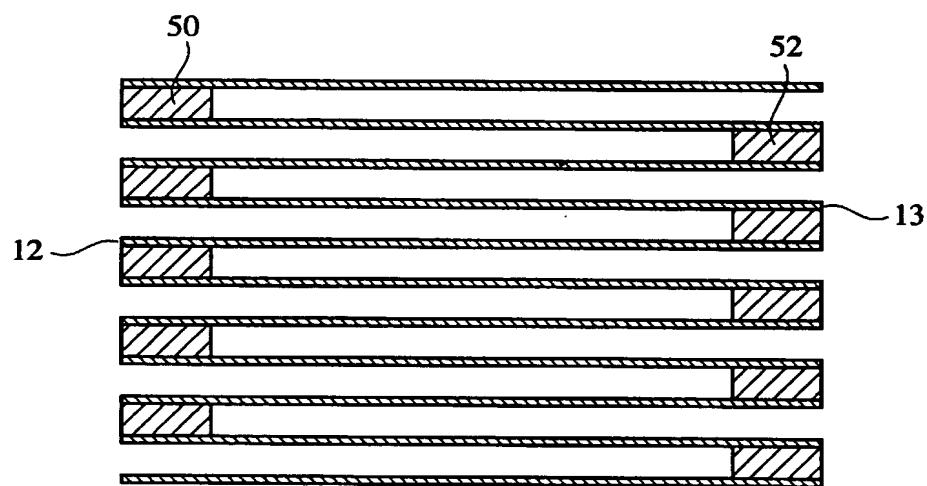
(c)



[図5]



[図6]



[図7]

